

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-291260

(43) 公開日 平成9年(1997)11月11日

| (51) Int.Cl. ⁶ | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
|-------------------------------------|-------|--------|--------------|--------|
| C 0 9 J 7/00 | J H M | | C 0 9 J 7/00 | J H M |
| | J H H | | | J H H |
| | J H L | | | J H L |
| 9/02 | J A S | | 9/02 | J A S |
| 11/00 | J A U | | 11/00 | J A U |
| 審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 7 頁) 最終頁に続く | | | | |

(21) 出願番号 特願平8-105270

(22) 出願日 平成8年(1996)4月25日

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社
東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 塚越 功

茨城県下館市大字五所宮1150番地 日立化
成工業株式会社五所宮工場内

(72) 発明者 松田 和也

茨城県下館市大字五所宮1150番地 日立化
成工業株式会社五所宮工場内

(72) 発明者 小林 宏治

茨城県下館市大字五所宮1150番地 日立化
成工業株式会社五所宮工場内

(74) 代理人 弁理士 若林 邦彦

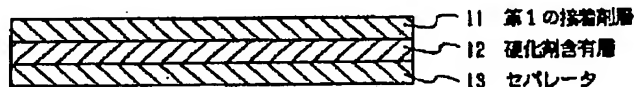
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤および該接着剤からなる接続部材

(57) 【要約】

【課題】 保存性と低温速硬化性の両立が可能な接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤およびこれを用いた接続部材を提供する。

【解決手段】 硬化剤と反応性を有する2種以上の接着剤成分よりなる反応性接着剤組成物において、硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分を、第1の接着剤成分に比べ当該硬化剤との反応性に劣る他の接着剤成分から隔離してなる接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤。



【特許請求の範囲】

【請求項1】硬化剤と反応性を有する2種以上の接着剤成分よりなる反応性接着剤組成物において、硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分を、第1の接着剤成分に比べ当該硬化剤との反応性に劣る他の接着剤成分から隔離してなる接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤。

【請求項2】硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分をマイクロカプセル化し、第1の接着剤成分に比べ当該硬化剤との反応性に劣る他の接着剤成分中に含有してなる請求項1記載の接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤。

【請求項3】片面に硬化剤含有層を形成し、他の面に硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分含有層を形成してなる請求項1又は2に記載の複層構造のフィルム状接着剤。

【請求項4】硬化剤がイミダゾール系であり、第1の接着剤成分がアミノ化合物である請求項1、2又は3に記載の接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤。

【請求項5】硬化剤がカチオン性熱重合開始剤であり、第1の接着剤成分が脂環式エポキシ化合物である請求項1乃至4のいずれかに記載の接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤。

【請求項6】硬化剤との反応性に劣る他の接着剤成分がビスフェノール型エポキシ樹脂である請求項1乃至5のいずれかに記載の接着剤組成物。

【請求項7】請求項1乃至6記載の接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤に対し、0.1～20体積%の導電粒子を含有してなる接続部材。

【発明の詳細な説明】**【0001】**

【発明の属する技術分野】本発明は、保存性と低温速硬化性に優れた接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤および接続部材に関する。

【0002】

【従来の技術】保存性と速硬化性の相反する性質を両立させるために、硬化剤を微小容器（マイクロカプセル）により隔離することは従来から行われている。これは、例えばアミン系の硬化剤を核材とし、その表面をポリウレタン系被覆材で隔離したマイクロカプセル型硬化剤をエポキシ樹脂中に分散し、使用時の加熱、加圧、あるいは加熱加圧、および超音波などのエネルギーにより、マイクロカプセルを破壊することにより、硬化剤とエポキシ樹脂とを接触もしくは一体化させて、エポキシ樹脂の硬化反応を開始させるものである。この場合破壊手段を及ばさない限り、硬化剤とエポキシ樹脂は原則的に接触し難いので保存性も良好である。このようなマイクロカプセル型硬化剤として、例えば特開昭60—99179号公報や特開昭64—70523号公報などに示されるような、エポキシ樹脂とイミダゾール系誘導体を反応させ、その表面をイソシアネート化合物で不活性化したもの

のやアミノ化合物の表面をエポキシ樹脂と反応させ不活性化したものなどが知られている。

【0003】ところで、上記したような保存性と速硬化性に優れた接着剤組成物の用途として、例えば液晶パネルやICチップ等の電子部品において2つの相對峙する電極間に接着剤を配置し、両電極を接続する接続部材がある。この場合、接着剤中に導電性粒子を配合し加圧により接着剤の厚み方向に電氣的接続を得るもの（例えば特開昭55—104007号公報）と、導電性粒子を用いずに接続時の加圧により電極面の微細凹凸の接触により電氣的接続を得るもの（例えば特開昭60—262430号公報）とが知られている。接続部材の接着剤としては、微小な電極接続部の信頼性を維持するために、熱、紫外線、および電子線等のエネルギーで硬化し、耐熱性及び耐湿性が良好な反応性接着剤が多用される。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】接続部材が必要とする保存性と速硬化性の両立は、近年の接着作業の自動化の著しい進展により要求がますます厳しくなっている。例えば保存性は従来の冷蔵もしくは冷凍保管から、接着作業雰囲気である常温保存で2ヵ月以上である。また速硬化性は従来の170℃20秒程度であるのに対し、170℃10秒以下といった短時間硬化が生産性の向上から求められている。さらに加えて130℃20秒以下といった低温短時間硬化の要求が強い。これは低温硬化が可能であると、例えば液晶や配向膜等の周辺部材に対する熱損傷の防止に有効であり、またプラスチックフィルムやガラスエポキシ等の回路基板の熱膨張による接続時の電極の位置ずれの防止からも重要である。すなわち接続部材として、近年では保存性と低温速硬化性の両立が要求されるが、従来のマイクロカプセル型硬化剤のみの手法では対応が困難になっている。本発明はかかる状況に鑑みなされたもので、保存性と低温速硬化性の両立が可能な接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤およびこれらを用いた接続部材を提供するものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、硬化剤と反応性を有する2種以上の接着剤成分よりなる反応性接着剤組成物において、硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分を、第1の接着剤成分に比べ当該硬化剤との反応性に劣る他の接着剤成分から隔離してなる接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤に関し、硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分をマイクロカプセル化して隔離し、第1の接着剤成分に比べ当該硬化剤との反応性に劣る他の接着剤成分中に含有してなる接着剤組成物、もしくは片面に硬化剤含有層を形成し、他の面に硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分含有層を形成してなる複層構造のフィルム状接着剤に関するものである。

【0006】

【発明の実施の形態】その好ましい実施態様として、本

発明は硬化剤がイミダゾール系であり、第1の接着剤成分がアミノ化合物である接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤あるいは硬化剤がカチオン性熱重合開始剤であり、第1の接着剤成分が脂環式エポキシ化合物である接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤に関する。また、これらの接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤に対し、0.1～20体積%の導電粒子を含有してなる接続部材についても包含する。

【0007】本発明の隔離手段として好ましいマイクロカプセルについて、図1～2を用いて説明する。図1は本発明に用いるマイクロカプセルの模式断面図である。マイクロカプセル3において、核1は硬化剤と最も反応性を有する第1の接着剤成分（後で詳述）であり、被覆層2により全表面が実質的に覆われ核1が外界と隔離される。

【0008】被覆層2は特に限定されないが、ポリスチレン、ゼラチン、ポリイソシアネート等の高分子物質や、ケイ酸カルシウム等の無機物、およびニッケルや銅等の金属薄膜等よりなる。被覆層2の形成方法としては、溶剤蒸発法、スプレードライ法、コアセルベーション法、界面重縮合法、in situ重合法などの物理的および/または化学的な一般に公知の方法でよい。

【0009】図2は、本発明の接着剤組成物の一例を示す模式断面図である。マイクロカプセル3は、硬化剤4と第1の接着剤成分に比べ当該硬化剤との反応性に劣る他の第2の接着剤成分5中に分散され本発明の接着剤組成物を形成する。

【0010】硬化剤4は、イミダゾール系、オニウム塩系、ヒドラジド系、三フッ化ホウ素—アミン錯体、アミンイミド、ポリアミンの塩、ジシアンジアミドなど、およびこれらの変性物があり、これらは単独または2種以上の混合体として使用できる。これらは、アニオンまたはカチオン重合型などのいわゆるイオン重合性の触媒型硬化剤もしくは熱重合開始剤と呼ばれ、保存性や速硬化性を得やすく、また化学当量的な考慮が少なくよいため好ましい。硬化剤としてはその他に、ポリアミン類、ポリメルカプタン、ポリフェノール、酸無水物等や前記触媒型硬化剤との併用も可能である。これらの中では、アニオン型のイミダゾール系のものが非金属系であり、電食をおこし難く、また反応性や接続信頼性の点から特に好ましい。また、カチオン型のオニウム塩系も極めて速硬化性を得られることから、同様に好ましく適用できる。

【0011】イミダゾール系硬化剤としては、イミダゾール、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-ウンデシルイミダゾール、1-シア

ノエチル-2-ウンデシルイミダゾリウム・トリメリテート、2-フェニルイミダゾリウム・イソシアヌレート、2,4-ジアミノ-6-{2-ウンデシルイミダゾリル-(1)}-エチル-s-トリアジン等が例示できる。

【0012】オニウム塩系としては、p-ヒドロキシフェニルベンジルメチルスルホニウム塩、p-ヒドロキシフェニル-p-ニトロベンジルメチルスルホニウム塩、p-アセトキシフェニルベンジルメチルスルホニウム塩、p-メトキシカルボニルフェニルベンジルメチルスルホニウム塩などのスルホニウム塩が挙げられる。

【0013】長期保存性と低温速硬化性という矛盾した特性の両立が要求される本発明のさらに好ましい形態としては、これらの硬化剤を核とし、ポリウレタン系、ポリエステル系等の高分子物質や、Ni、Cu等の金属薄膜およびケイ酸カルシウム等の無機物で被覆したマイクロカプセル型であることである。カプセル型硬化剤の使用に当たって注意すべき点は、カプセルの粒径を例えばフィルム状接着剤の厚みよりも小さくして保存時のカプセル破壊を防止することや、カプセルの被覆層の材質を組成物や溶剤などに対して耐性のあるものとするところである。

【0014】本発明の当該硬化剤との反応性は、接着剤成分と硬化剤の任意の配合物を試料としてDSC（示差走査熱量計）を用いて、室温から10℃/分で昇温させた時の発熱ピーク温度で示される活性温度で表す。

【0015】マイクロカプセル3における核1は、硬化剤と最も反応性を有する第1の接着剤成分である。これらはメルカプト化合物やポリアミド化合物、水、酸などがある。これらは一般的な選択の目安として、第2の接着剤成分と混合した時に常温でも速やかに反応するものがよく、また以下に述べるように硬化剤に対し特別に速硬化性を示すものがより好ましい。

【0016】硬化剤がイミダゾール系の場合、第1の接着剤成分がアミノ化合物が好ましい。アミノ化合物としては、トリグリシジル-p-アミノフェノール、トリグリシジルイソシアヌレート、テトラグリシジルメタキシレンジアミン、テトラグリシジルアミノフェニルメタン、テトラグリシジル-1,3-ビスアミノメチルシロキサン、ジグリシジルアニリン、ジグリシジルオルソトルイジン、ヘキサグリシジルメシチレントリアミン等のグリシジルアミン樹脂類、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β（アモノエチル）γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-ウレイドプロピルトリエトキシシラン等のシランカップリング剤類、イソプロピル（ドデシルベンゼンスルホン）4-アミノベンゼンスルホンチタネート、イソプロピルイソステアロイルジ4-アミノベンゾイルチタネート等のシランカップリング剤類を例示できる。

【0017】硬化剤がカチオン性熱重合開始剤であるオ

ニウム塩系の場合、第1の接着剤成分が脂環式エポキシ化合物が好ましい。脂環式エポキシ化合物は、その分子中に脂環族基を有し、かつ脂環族基の一部がエポキシ化されている化合物である。例えば、ビニルシクロヘキセンジエポキシド、ビニルシクロヘキセンモノエポキシド、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキサノカルボキシレート等の脂環式のエポキシ樹脂類、 β -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン等のカップリング剤類が好ましい。その他エステル化合物類、ポリアミン類を例示できる。

【0018】本発明に用いる硬化剤との反応性に劣る他の第2の接着剤成分としては、エポキシ樹脂が代表的である。エポキシ樹脂は、例えばエピクロロヒドリンとビスフェノールAやF、D等から誘導されるビスフェノール型エポキシ樹脂、エピクロロヒドリンとフェノールノボラックやクレゾールノボラックから誘導されるエポキシノボラック樹脂が代表的であり、その他グリシジルエステル、脂環式、複素環式、ブロム化、フッ素化エポキシなどの1分子内に2個以上のオキシラン基を有する各種のエポキシ化合物が適用できる。これらは単独または2種以上混合して用いることが可能である。これらエポキシ樹脂は、不純物イオン(Na^+ 、 Cl^- など)や、加水分解性塩素などを300ppm以下に低減した高純度品を用いることが、電食やエレクトロンマイグレーション防止のために好ましい。

【0019】上記したエポキシ樹脂の中では、ビスフェノール型エポキシ樹脂が分子量の異なるグレードが広く入手可能で、接着性や反応性などを任意に設定できることから好ましい。中でもビスフェノールF型エポキシ樹脂は、粘度が特に低いことから流動性を広範囲に設定できることや、液状であり粘着性も得やすいことから特に好ましい。

【0020】その他接着剤組成物中には、熱可塑性樹脂、充填剤、軟化剤、促進剤、老化防止剤、着色剤、難燃化剤、チキソトロピック剤、カップリング剤およびフェノール樹脂やメラミン樹脂、イソシアネート類などの硬化剤や触媒などを含有することもできる。これらの中では、導電粒子やシリカなどの充填剤およびシラン、チタン、クロム、ジルコニウム、アルミニウムなどの各系のカップリング剤が特に有用である。カップリング剤としては、エポキシ基、およびイソシアネート基含有物が接着性の向上の点から特に好ましい。

【0021】熱可塑性樹脂はフィルム形成やリワーク性の向上を目的に必要に応じて用いる物であり、適用可能な熱可塑性樹脂としては、フェノキシ樹脂を含む高分子量エポキシ樹脂、ポリビニルアセタール、ポリスルホン、ポリエステル、ポリウレタン、ポリアミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリエーテル、ポリシロキサン、ポリエーテルイミド、ポリビニル、エポキシアクリ

レート、例えばスチレン等の各種の熱可塑性エラストマーなどがあり、これらの混合物や共重合物でもよい。これら熱可塑性樹脂の分子量は、2000以上がフィルム形成性の点から好ましい。また組成物中に占める割合は、フィルム形成が可能であればできるだけ少量とすべきであり、好ましくは50重量%以下である。

【0022】これらの中で、好ましい実施態様であるフェノキシ樹脂について説明する。フェノキシ樹脂は、分子量が10,000以上の高分子量エポキシ樹脂であり、エポキシ樹脂と構造が似ていることからエポキシ樹脂と相溶性がよく、また接着性も良好な特徴を有する。分子量の大きいほどフィルム形成性が容易に得られ、また接続時の流動性に影響する溶融粘度を添加量により広範囲に設定できる。ビスフェノールAから導入された一般的なフェノキシ樹脂に比べ、ビスフェノールFからの導入品は、相溶性や流動性の制御が行いやすくさらに好ましい。

【0023】本発明に必要なに応じて用いる粘着付与剤としては、ロジンやテルペンなどの天然物系樹脂、脂肪族、脂環族、芳香族、クマロン・インデン、スチレン系などの重合系樹脂、およびフェノールやキシレン系などの縮合系樹脂などがあり、これらの変性体や誘導体がある。これらは単独もしくは2種類以上混合して用いることができる。これらは、接着剤系の凝集力を高める点から軟化点40°C以上の固形物が好ましい。

【0024】導電粒子としては、Au、Ag、Ni、Cu、はんだ等の金属粒子やカーボン等があり、これらおよび非導電性のガラス、セラミック、プラスチック等により前記した導電層を被覆などにより形成したものでもよい。プラスチックを核とした場合や熱溶融金属粒子の場合、加熱加圧により変形性を有するので接続時に電極との接触面積が増加し信頼性が向上するので好ましい。導電粒子は、0~30体積%、好ましくは接着剤組成物に対し、20体積%以上とすることで均一導電性層を形成することや、0.1~20体積%とすることで厚み方向に導電性の異方導電性とすることも可能である。またこれらの粒子の表面に接続時に溶融する絶縁層を形成することもできる。

【0025】本発明の接着剤組成物は一液型接着剤として、中でもフィルム状接着剤として特に有用である。この場合例えば、上記で得た接着剤組成物を溶剤あるいはエマルションの場合の分散液などとして液状化して、離形紙などのセパレータ上に形成し、あるいは不織布等の基材に前記配合液を含浸させてセパレータ上に形成し、硬化剤の活性温度以下で乾燥し溶剤あるいは分散液等を除去すればよい。

【0026】フィルム状接着剤の場合、導電粒子含有層と非含有層による複合層や、硬化性やリワーク性に差を有する複合層とするなどの機能性の分離形成も可能である。フィルム状であると、一定厚みの連続状で形成可能

なため接続作業の自動化が図れるので、接続作業性が向上するなどの利点を有することから好ましい。フィルム状接着剤における本発明の他の隔離手段について、図3～5を用いて説明する。図3～5は、硬化剤含有層12と反応性の高い第1の接着剤成分含有層である第1の接着剤層11を分離して形成してなるフィルム状接着剤である。図3～4の場合、片面に硬化剤含有層12を形成し、他の面に硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分含有層11を形成してなる複層構造のフィルム状接着剤が得られる。この場合、硬化剤含有層12と第1の接着剤層11を相溶性がない構成とする工夫が保存性向上の点から好ましい。

【0027】図4のように、剥離可能なセパレータ13に硬化剤含有層12もしくは第1の接着剤層11のいずれかを形成してもよい。さらに図5のように加熱により溶融するフィルム14の片面に硬化剤含有層を形成し、他の面に硬化剤と最も反応性の高い第1の接着剤成分含有層を形成すると、フィルム14が遮蔽層として存在するのでより好ましい。この場合、フィルム14の溶融温度以上で接続することで各成分が一体化し反応するが、溶融温度以下では隔離されているので良好な保存性が合わせて得られる。

【0028】本発明で得た接着剤組成物を用いた回路や電極の接続について説明する。この方法は、接着剤組成物を基板上の相對峙する電極間に形成し、加熱加圧により両電極の接触と基板間の接着を得る電極の接続方法である。電極を形成する基板としては、半導体、ガラス、セラミックなどの無機物、ポリイミド、ポリカーボネートなどの有機物、ガラス／エポキシなどのこれら複合体の各組合わせが適用できる。

【0029】本発明においては、硬化剤と最も反応性を有する第1の接着剤成分を他の接着剤成分から隔離してなるので、従来困難であった長期保存性と低温速硬化性という矛盾した特性の両立が可能となる。第1の接着剤成分は硬化剤と最も反応性を有し、例えば爆発的に反応が進み反応系全体に対し起爆剤として作用するので、組成物全体の反応性が著しく向上する。また隔離手段がマイクロカプセルの場合、硬化剤と最も反応性を有する第1の接着剤成分をマイクロカプセル化し、第1の接着剤成分に比べ当該硬化剤との反応性に劣る第2の接着剤成分中に前記マイクロカプセルを含有してなる接着剤組成物であり、マイクロカプセルなので組成物もしくはフィルム状接着剤全体への分散性がよく、均一反応が得られ安定した特性が得られる。硬化剤のみをマイクロカプセル化する従来の手法では、被覆層の欠陥を考慮すると、このような硬化剤と最も反応性を有する第1の接着剤成分の導入は、保存性と低温速硬化性の両立が工業的に困難であったが、本発明により可能となる。また本発明の好ましい形態である硬化剤もまたマイクロカプセルとすると、長期保存性と低温速硬化性である本発明の効果が

一層大きく期待できる。さらに、隔離手段が硬化剤含有層12と反応性の高い第1の接着剤成分含有層である第1の接着剤層11を分離して形成の場合、マイクロカプセル化といった面倒な工程が不要のため一定厚みの連続状態で製造が可能であり生産性が高い。

【0030】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づいて詳細に説明する。

【0031】実施例1

(1) マイクロカプセルの作製

ポリスチレンの0.5%ジクロロメタン溶液20mlを作製し、これにA-1120（γ-アミノプロピトリメトキシシラン、日本ユニカー株式会社商品名）に1%水溶液10mlを加え高速攪拌し乳化した。別の容器に1%ジビニルベンゼン水溶液300mlを取り、先の乳化液を加え40℃で8時間攪拌し、ジクロロメタンを蒸発させた。以上の液中乾燥法によりA-1120を核に、表面がポリスチレン（ジビニルベンゼンで架橋）で覆われた粒径約10μmのマイクロカプセルを得た。

(2) 組成物の作製

(1)で得たマイクロカプセル（1120カプセルと略）したものを、エピコートYL-980（ビスフェノールA型高純度液状エポキシ樹脂、加水分解性塩素イオン150ppm、油化シェルエポキシ株式会社製商品名、980と略）と潜在性硬化剤ノバキュア3742（イミダゾール変性体を核とし、その表面をポリウレタン系被膜で被覆してなる平均粒径2μmのマイクロカプセル型硬化剤を液状エポキシ樹脂に分散したマスターバッチ型硬化剤、硬化剤／エポキシ樹脂の比1/2、活性温度132℃、旭化成工業株式会社製商品名、3742と略）を、記述順に固形分比で、10/50/40/0.5となるように混合し組成物を得た（実施例1）。実施例1の組成物100重量部に対し、2体積部の導電粒子（平均粒径5μmのスチレン-ジビニルベンゼン共重合樹脂球の表面に金属薄層を有する、プラと略）を添加攪拌し組成物を得た（実施例2）。

(3) 評価

この組成物を用いて、ライン幅30μm、ピッチ60μm、厚み20μmの銅回路上に錫の薄層を有するフレキシブル回路板（FPC）と、全面に酸化インジウム（ITO）の薄層を有する厚み0.7mmのガラス板とを、130℃—20kg/cm²—20秒により、幅2μmで接続した。この際、あらかじめガラス板の接続部ITO上に、シルクスクリーンで厚み20μmとなるように組成物を塗布形成した。組成物は無溶剤なので形成後の乾燥は不要であった。信頼性は初期抵抗に対する85℃85%RH—1000h後の接続抵抗値の上昇倍率であり、FPCの隣接回路の抵抗200点の $\mu + 3\sigma$ の処理前後の比率が2倍以内を良好レベルとした。保存性は常温（25℃）保存後に上記の信頼性評価を行い、特性に

変化の見られない期間が2ヵ月以上を良好レベルとした。

(4) 結果

実施例1～2は130℃という低温接続であるが、いずれも良好な信頼性であり、保存性と信頼性の両立を得た。実施例1の場合、組成物が無溶剤なので室温でも液状であり、接続時に対抗する電極同士が十分に接触可能なため、回路面の微細凹凸の直接接合により導電粒子のない場合も接続可能であった。実施例2の導電粒子は回路の凹凸を吸収し良好な接続が得られた。

【0032】比較例1

実施例2と同様であるが、A-1120のマイクロカプセル処理を行わなかった。この場合、組成物(A-1120/3742=10/40)の活性温度は105℃に低下し、反応性の向上が得られたものの保存性は常温(25℃)1日レベルと悪かった。

【0033】実施例3および比較例2

実施例2および比較例1と同様であるが、A-1120に代えてELM120(多官能アミノエポキシ、住友化学株式会社商品名)を用いた。実施例3は、良好な保存性と信頼性の両立を得た。比較例2はELM120のマイクロカプセル処理を行わなかった。この場合、活性温度が116℃に低下し反応性の向上が得られたものの、保存性は常温(25℃)数日レベルと悪かった。

【0034】実施例4および比較例3

実施例1～3と同様であるが、A-1120に代えて、A-186(脂環式のエポキシ基を有するシランカップリング剤、日本ユニカー株式会社商品名)を、また3742に代えてp-アセトキシフェニルベンジルメチルスルホニウム塩と液状エポキシ樹脂に10/30(活性温度115℃)となるように分散した。実施例4は良好な保存性と信頼性の両立を得た。比較例3はA-186のマイクロカプセル処理を行わなかったため、活性温度は80℃に低下し反応性の向上が得られたものの、保存性は常温(25℃)1日レベルと悪かった。

【0035】実施例5および比較例4

実施例4と同様であるが、A-186に代えてERL-4221(脂環式エポキシ樹脂、ユニオンカーバイド社商品名)を用いた。実施例5は良好な保存性と信頼性の両立を得た。比較例4はA-186のマイクロカプセル処理を行わなかった。この場合の活性温度は90℃に低下し反応性の向上が得られたものの、保存性は常温(25℃)1日レベルと悪かった。

【0036】実施例6～9

実施例2と同様であるが、熱可塑性樹脂および導電粒子の種類を変えた。熱可塑性樹脂としてPKHA(ビスフェノールAより誘導されるフェノキシ樹脂、分子量25,000、水酸基6%、ユニオンカーバイド株式会社製商品名、PKと略)、PVB-3000K(ポリビニルブチラール、分子量30,000、水酸基含有、電気

化学工業株式会社製商品名、PVと略)、タフテックM-1913(カルボキシル化SEBS、旭化成株式会社製商品名、M1と略)、WS-023(アクリルゴム、水酸基およびカルボキシル基含有、帝国化学産業株式会社製商品名、WSと略)であり、980の20部%を置き換えた。また導電粒子として実施例2の粒子の表面に厚み約0.3μmのスチレン系被膜を有する表面絶縁処理粒子(被覆と略)を15体積部添加した。前記接着剤組成物を、トルエン/酢酸メチル=8/2の50%溶液とし、セバレータ上に乾燥後の厚みが20μmとなるように形成し評価した。各実施例はいずれも良好な結果を示した。本実施例6～9(熱可塑性樹脂の記述順)では、表面絶縁処理粒子を用いたため、15体積部と多量の添加が可能であり、微小な電極上に多数の粒子を確保することが可能であった。

【0037】実施例10

実施例9と同様であるが導電粒子を変更し、平均粒径3μmのニッケル(Niと略)を0.5体積部添加した。各実施例はいずれも良好な結果を示した。

【0038】実施例11～12

実施例9と同様の材料であるが製法を変えた。表面絶縁処理粒子15体積部含有のPKHAフィルムの片面に、WS/3742=50/50の厚み7μm層を、他の面にWS/980/A-1120=40/50/10の厚み7μm層を形成した(実施例11)。A-1120に変えて1120カプセルについても作製した(実施例12)。各実施例はいずれも良好な保存性と信頼性の両立を得た。

【0039】

【発明の効果】以上詳述したように本発明によれば、保存性と低温速硬化性の両立が可能な接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤およびこれを用いた接続部材を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例を示すマイクロカプセルの断面模式図である。

【図2】本発明の一実施例を示す接着剤組成物もしくはフィルム状接着剤の断面模式図である。

【図3】本発明の他の実施例を示すフィルム状接着剤の断面模式図である。

【図4】本発明のさらに他の実施例を示すフィルム状接着剤の断面模式図である。

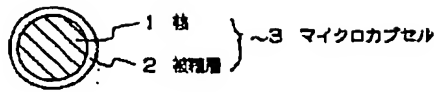
【図5】本発明のさらに他の実施例を示すフィルム状接着剤の断面模式図である。

【符号の説明】

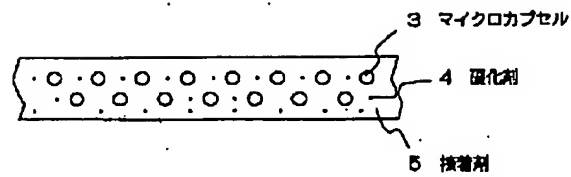
- | | |
|-------------|------------|
| 1. 核 | 2. 被覆層 |
| 3. マイクロカプセル | 4. 硬化剤 |
| 5. 接着剤 | |
| 11. 接着剤層 | 12. 硬化剤含有層 |
| 13. セバレータ | 14. 熱溶融性フィ |

ルム

【図1】



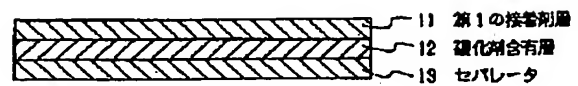
【図2】



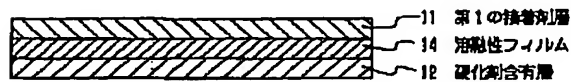
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁶

C 0 9 J 163/00
201/00

識別記号

J F K
J A Q

庁内整理番号

F I

C 0 9 J 163/00
201/00

技術表示箇所

J F K
J A Q

(72)発明者 藤縄 貢

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成
工業株式会社下館研究所内

BEST AVAILABLE COPY

THIS PAGE BLANK (USPTO)